

3、W1588-02

POROUS FILM AND SEPARATOR FOR BATTERY

Patent number: JP11195409
Publication date: 1999-07-21
Inventor: KIUCHI MASAYUKI; NAKAKITA TOMOJI; KAWABATA KENJI
Applicant: UBE IND LTD
Classification:
- international: H01M2/16; C08J9/00; H01G9/02
- european:
Application number: JP19980000647 19980106
Priority number(s):

Report a data error here**Abstract of JP11195409**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a porous film as a separator for a battery such as a lithium battery, having a shape holding performance during fusing, having no short- circuit during a battery assembly and its using, and especially having an improved piercing intensity.

SOLUTION: In a polyolefine porous film consisting of polyolefine 1-10 weight % selected from polyethylene, poly(ethylene-propylene) copolymer, polybutene 1, poly(propylene-butene 1) copolymer, and polypropylene 99-90 weight % having number average molecular weight of 80,000 or more, it is specified that the porous film has a polypropylene pentad fraction of 96% or more.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Patent Abstracts of Japan**BEST AVAILABLE COPY**

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-195409

(43)公開日 平成11年(1999)7月21日

(51) Int.Cl.⁶
 H 01 M 2/16
 C 08 J 9/00
 H 01 G 9/02

識別記号
 C E R
 3 0 1

F I
 H 01 M 2/16
 C 08 J 9/00
 H 01 G 9/02

P
 L
 C E R A
 3 0 1

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全6頁)

(21)出願番号 特願平10-647

(22)出願日 平成10年(1998)1月6日

(71)出願人 000000206
 宇部興産株式会社
 山口県宇部市西本町1丁目12番32号
 (72)発明者 木内 政行
 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部
 興産株式会社高分子研究所内
 (72)発明者 中北 友二
 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部
 興産株式会社高分子研究所内
 (72)発明者 川端 健嗣
 山口県宇部市西本町1丁目12番32号 宇部
 興産株式会社高分子研究所内

(54)【発明の名称】 多孔質フィルム及び電池用セパレーター

(57)【要約】

【課題】 リチウム電池等の電池用セパレーターとして、溶融時の形状保持性に優れ、電池組立時や使用時に短絡の無い、特に突刺し強度が改良された多孔質フィルムを提供するものである。

【解決手段】 ポリエチレン、ポリ(エチレン-プロピレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(プロピレン-ブテン1)共重合体より選ばれたポリオレフィン1~10重量%と数平均分子量が8万以上であるポリプロピレン9.9~9.0重量%とからなるポリオレフィン系多孔質フィルムであって、ポリプロピレンのペントラッド分率が9.6%以上である多孔質フィルムに関する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリエチレン、ポリ(エチレン-プロピレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(ブロビレン-ブテン1)共重合体より選ばれたポリオレフィン1~10重量%と数平均分子量が8万以上であるポリプロピレン99~90重量%とからなるポリオレフィン系多孔質フィルムであって、ポリプロピレンのペントッド分率が96%以上であることを特徴とする多孔質フィルム。

【請求項2】 多孔質フィルムが延伸法によって多孔化された単層または積層多孔質フィルムであることを特徴とする請求項1記載の多孔質フィルム。

【請求項3】 多孔質フィルムを構成要素として含有する電池用セバレーターにおいて、多孔質フィルムが請求項1記載の多孔質フィルムであることを特徴とする電池用セバレーター。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電池用セバレーターや電解コンデンサ用隔膜等として有用な多孔質フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、電池用セバレーターや電解コンデンサ用隔膜等としてポリオレフィン系多孔質フィルムが使用されている。特に、近年技術の高度化に伴い、リチウム電池等においては高精度、高機能のセバレーターが要求されるようになってきた。

【0003】 電池を例にとってみると、近年高エネルギー密度、高起電力、自己放電の少ないリチウム電池のような非水電解液電池、特にリチウム二次電池が開発、実用化されている。リチウム電池の負極としては例えば金属リチウム、リチウムと他の金属との合金、カーボンやグラファイト等のリチウムイオンを吸着する能力又はインターラーニングにより吸蔵する能力を有する炭素材料、リチウムイオンをドーピングした導電性高分子材料等が知られており、また正極としては例えば(CF_x)_nで示されるフッ化黒鉛、MnO₂、V₂O₅、CuO、Ag₂CrO₄、TiO₂、LiCoO₂、LiMn₂O₄等の金属酸化物や硫化物、塩化物が知られている。このようなリチウム二次電池の構成材料であるセバレーターの役割は、正負両極の短絡を防止することにあり、以下のような種々の多孔質フィルムが提案されている。

【0004】 ①ポリエチレン、ポリプロピレン等の熱可塑性樹脂の単層の多孔質フィルム(特公昭46-40119号公報、特公昭55-32531号公報、特公昭59-37292号公報、特開昭60-23954号公報、特開平2-75151号公報、米国特許第3679538号明細書等)。

②分子量の異なるポリエチレン混合物やポリエチレンとポリプロピレンの混合物を素材とした多孔質フィルム

(特開平2-21559号公報、特開平5-331306号公報等)。

③支持体に熱可塑性樹脂や不織布を用いた多孔質フィルム(特開平3-245457号公報、特開平1-258358号公報等)。

④材質の異なる熱可塑性樹脂の多孔質膜が複数枚積層された積層多孔質フィルム(特開昭62-10857号公報、特開昭63-308866号公報、特開平2-77108号公報、特開平5-13062号公報、特公平3-65776号公報、特開平6-55629号公報、特開平6-20671号公報、特開平7-307146号公報等)。

上記多孔質フィルムは、一般に未延伸のフィルムを延伸により多孔化する延伸法や、抽出可能な充填剤、可塑剤等を配合した未延伸フィルムから溶媒で充填剤、可塑剤等を抽出して多孔化し、必要に応じて抽出前または抽出後に1軸または2軸延伸を施す抽出法で製造されている。

【0005】 リチウム電池の極板表面には、しばしば数十μm程度の凹凸が存在する。このため、ポリオレフィン系多孔質フィルムを電池用セバレーターとしてリチウム電池に組込むと、極板表面の凹凸によってフィルムが損傷され、短絡に至ることが懸念されている。そこで、機械的強度の異なる2種類の多孔質フィルムの組み合せによるフィルム強度の向上が提案されているが、未だ十分とは言えず、更に改良の余地がある。

【0006】 また、これらの多孔質フィルムの多孔化方法には大別して延伸法(乾式法)と抽出法(湿式法)とがある、湿式法は熱可塑性樹脂に充填剤や可塑剤を配合

30 した樹脂組成物を押出してフィルムを製造し、その後フィルムから充填剤や可塑剤を抽出して多孔化して、多孔質フィルムを得る方法であるが、この方法では充填剤や可塑剤の配合や抽出を必要とし、微細で均一な孔径を有する多孔質フィルムにするためには操作工程が複雑化するだけでなく、抽出液の処理等の問題がある。これに対して延伸法は、熱可塑性樹脂を押出した後に延伸多孔化する方法で製造される。この延伸法は全く溶剤を使用しない乾式プロセスであるため極めて簡便で安全性に優れ且つ低コストのプロセスである上に、微細で均一な孔径

40 の多孔質膜が得られる点で電池用セバレーターの製造方法として湿式法に比較して優れている。これらの優れた特徴を有する延伸法により得られた多孔質フィルムを使用した電池用セバレーターとして各種のものが提案されているが、鋭い突起等で突き刺された場合に延伸方向に縦裂きし易いという難点がありその改良が指摘されていた。本発明の目的は、リチウム電池等の電池用セバレーターとして、電池組立時や使用時の短絡のない機械的強度の優れたポリオレフィン系多孔質フィルムを提供することにある。

50 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、鋭意研究の結果、高立体規則性ポリプロピレンに適切な種類及び量のポリオレフィンを配合することで、これを簡便に延伸多孔化することが可能となり、しかも突刺し強度等の機械的強度の優れた多孔質フィルムが得られることを見出した。すなわち、本発明は、ポリエチレン、ポリ(エチレンーブロビレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(ブロビレンーブテン1)共重合体より選ばれたポリオレフィン1~10重量%と数平均分子量が8万以上であるポリプロピレン99~90重量%とからなるポリオレフィン系多孔質フィルムであって、ポリプロピレンのペントッド分率が96%以上であることを特徴とする多孔質フィルムに関する。また、本発明は、前記多孔質フィルムを構成要素として含有する電池用セバレーターに関する。

【0008】本発明に使用されるポリプロピレンは、ペントッド分率が96%以上あって、数平均分子量が8万以上、より好ましくは10万以上、数平均分子量と重量平均分子量の比が5以下のものが機械的強度が高く好ましい。また、ポリプロピレンの結晶化温度は110°C以上が好ましく、特に112°C以上が好ましい。

【0009】ポリプロピレンのペントッド分率は、高分子分析ハンドブック(日本分析化学会編集)の記載に基づいて帰属した¹³C-NMRスペクトルから、ピーク高さ法によって算出した。¹³C-NMRの測定は、日本電子製 EX-400型 FT-NMRを使用して、0-ジクロロベンゼン中、測定温度130°C、積算回数8000回の条件で行った。ペントッド分率はポリプロピレンの立体規則性の指標であり、この値が100%に近づくに伴って、ポリプロピレンの剛性及び融点が高くなる。

【0010】また、ポリプロピレンに適宜配合するポリオレフィンとしては、ポリエチレン、ポリ(エチレンーブロビレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(ブロビレンーブテン1)共重合体が好ましく、さらに好ましくはポリプロピレンと相溶する共重合組成範囲に調製されたポリ(エチレンーブロビレン)共重合体或いはポリ(ブロビレンーブテン1)共重合体が好ましい。ポリプロピレンとポリオレフィンとが互いに相溶していると延伸法による多孔化が容易となり、機械的強度改良効果も大きい。

【0011】本発明の多孔質フィルムは上記ポリプロピレンとポリオレフィンとからなり、これら両成分の合計重量中に占めるポリプロピレンの割合が99~90重量%、ポリオレフィンの割合が1~10重量%であることが好ましく、より好ましくはポリプロピレンの割合が98~92重量%、ポリオレフィンの割合が2~8重量%、さらに好ましくはポリプロピレンの割合が98~95重量%、ポリオレフィンの割合が2~5重量%である。ポリプロピレンの割合が99重量%を超えて多くなる。

ると延伸法による多孔化が困難となり、ポリプロピレンの割合が90重量%よりも過度に少なくなると機械的強度が低下する。

【0012】ポリプロピレンとポリオレフィンとを配合する方法については特に制限はないが、通常の混練機を用いた混練により配合することができる。例えば、一軸押出機、二軸押出機、ミキシングロール等を用いて溶融混練し、ペレットを得ることができる。また、ヘンシェルミキサー、タンブラー等を用いてドライブレンドによって配合しても良い。さらに、ポリプロピレンを重合する際に、エチレン、ブテン1等のモノマーを添加することにより、逐次重合物としてポリプロピレンとポリオレフィンとの配合物を得ることもできる。

【0013】本発明の多孔質フィルムには、電池用セバレーターとしての特性を損なわない範囲において、界面活性剤、老化防止剤、可塑剤、難燃剤、着色剤、或いはガラス繊維、ケイ素系繊維等の補強材が適宜含まれても良い。

【0014】本発明の多孔質フィルムを製造する方法としては、ポリプロピレンの単層多孔質フィルムを製造する特開平2-75151号公報等の公知の方法がある。また、本発明の多孔質フィルムと例えばポリエチレンとを積層する場合は、特開平4-181651号公報、特開平7-307146号公報、特開平8-221977号公報等の方法で積層多孔質フィルムを製造することができる。積層するポリエチレンとしては、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、直鎖低密度ポリエチレン等のいずれであっても良いが、好ましくは高密度ポリエチレンである。積層多孔質フィルムの製造方法の具体例としては、ポリプロピレンとポリオレフィンとからなるポリプロピレン組成物フィルムとポリエチレンフィルムとをそれぞれ溶融押し出し積層した後、延伸多孔化する方法、ポリプロピレン組成物フィルムとポリエチレンフィルムとをそれぞれ別々に溶融押し出し延伸多孔化した後積層する方法がある。いずれの方法でも本発明の電池用セバレーターを製造することができる。溶融押出方法はTダイによる溶融押出成形法、インフレーション法等により行われる。例えばフィルムをTダイにより溶融成形する場合、一般に樹脂の溶融温度より20~60°C高い温度で、ドラフト比10~1000、好ましくは100~500のドラフト比で行われ、また引取速度は特に限定されないが通常10~100m/分で成形される。

【0015】溶融押出しされたポリプロピレン組成物フィルムは、結晶性及びその配向性を高めるために熱処理される。熱処理温度は、ポリプロピレンとポリオレフィンとの配合比によって異なるが、130°C以上150°C以下が好ましく、より好ましくは140°C以上150°C以下である。

【0016】熱処理されたポリプロピレン組成物フィルムは、その複屈折が1.5×10⁻³~2.5×10⁻³、好ま

しくは 17×10^{-3} ～ 23×10^{-3} で、100%伸長時の弾性回復率が80～94%、好ましくは84～92%の範囲にあるのがよい。複屈折がこれらの範囲をはずれると、延伸しても多孔化が十分にできないので適当ではなく、また弾性回復率が上記範囲をはずれた場合も多孔化の程度が十分でなくなり、延伸後の多孔質フィルムの孔径や孔径分布、空孔率、機械的強度等に影響し品質にバラツキが生じ易くなる。

【0017】本発明において、複屈折は偏光顕微鏡を使式 (1)

*用し、直交ニコル下でベレックコンベンセータを用いて測定された値である。また、弾性回復率は、次の式

(1)による。なお、測定はポリプロピレン組成物フィルムを25°C、65%相対湿度において試料幅10mm、長さ50mmで引張試験機にセットし50mm/minの速度で100%まで伸長した後、直ちに同速度で弛緩させたものについて行った。

【0018】

【数1】

$$\text{弾性回復率} = \frac{100\% \text{伸長時の長さ} - 100\% \text{伸長後荷重0となった時の長さ}}{\text{伸長前の長さ}} \quad (\%)$$

【0019】熱処理されたポリプロピレン組成物フィルムは、延伸により多孔化する。延伸温度は70～140°C、特に100～135°Cが好ましく、この範囲を外れると十分に多孔化されないので適当でない。延伸の倍率は、100～400%の範囲が好ましい。延伸倍率が低すぎると、ガス透過率が低く、また高すぎるとガス透過率が高くなりすぎるので上記範囲が好適である。

【0020】また、例えばポリエチレンフィルムと積層されたポリプロピレン組成物フィルムを延伸する場合は、延伸は、低温延伸した後、高温延伸するのが好ましい。低温延伸する際の温度は、マイナス20°C～プラス50°C、特に20～35°Cが好ましい。この延伸温度が低すぎると作業中にフィルムの破断が生じ易く、逆に高すぎると多孔化が不十分になるので好ましくない。低温延伸の倍率は5～200%、好ましくは10～100%の範囲である。延伸倍率が低すぎると、空孔率が小さいものしか得られず、また高すぎると所定の空孔率と孔径のものが得られなくなるので上記範囲が適当である。本発明において低温延伸倍率(E_1)は次の式(2)に従う。式(2)の L_1 は低温延伸後のフィルム寸法を意味し、 L_0 は低温延伸前のフィルム寸法を意味する。

【0021】

$$(式2) \quad E_1 = [(L_1 - L_0) / L_0] \times 100$$

【0022】低温延伸したフィルムは、次いで高温延伸される。高温延伸は普通には加熱空気循環オーブン中で行われる。高温延伸の温度は70～140°C、特に100～135°Cが好ましい。この範囲を外れると十分に多孔化されないので適当でない。また高温延伸は低温延伸の温度より40～100°C高い温度で行うのが好適である。高温延伸の倍率は100～400%の範囲が好ましい。延伸倍率が低すぎると、ガス透過率が低く、また高すぎるとガス透過率が高くなりすぎるので上記範囲が好適である。本発明において高温延伸倍率(E_2)は次の式(3)に従う。式(3)の L_2 は高温延伸後のフィルム寸法を意味し、また、 L_1 は低温延伸後のフィルム寸

法を意味する。

【0023】

$$(式3) \quad E_2 = [(L_2 - L_1) / L_1] \times 100$$

【0024】本発明において、低温延伸と高温延伸をした後、高温延伸の温度で熱固定する。熱固定は、延伸時に作用した応力残留によるフィルムの延伸方向への収縮を防ぐために予め延伸後のフィルム長さが10～50%減少する程度熱収縮させる方法や、延伸方向の寸法が変化しないように規制して加熱する方法等で行われる。この熱固定によって寸法安定性のよい所期の課題を満たすセバレーターとすることができます。

【0025】このようにして製造される電池用セバレーターの多孔質フィルムは、前記製造条件の選択によっても多少異なるが、空孔率は30～80%、好ましくは35～60%、極大孔径は0.02～2μm、好ましくは0.05～0.14μmである。空孔率が低すぎると電池用セバレーターとして使用したときの機能が十分でなく、また大きすぎると機械的強度が悪くなる。また極大孔径が小さすぎると、電池用セバレーターとして使用したときイオンの移動性が悪くなり、極大孔径が大きすぎるとイオン移動が大きすぎるので不適当である。

【0026】本発明の電池用セバレーターは、ポリエチレン、ポリ(エチレン-プロピレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(プロピレン-ブテン1)共重合体等のポリオレフィンを適切に配合することで、(乾式)延伸法では従来困難であったベンタッド分率が高くしかも高分子量のポリプロピレンの多孔化を可能にしている。このポリプロピレン組成物の使用は、電池用セバレーターの突刺し強度改良に効果がある。突刺し強度(g)は、試料フィルムを11.28mmφのホールダーに固定し、先端形状0.5R、径1mmφのニードルを2mm/secの速度で突き刺し、試料が破断したときの加重(g)がら求めた。

【0027】

【発明の実施の形態】次に実施例及び比較例を示し、本

発明の多孔質フィルムについて更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0028】

【実施例】実施例1

数平均分子量83000、ペンタッド分率96.6%、結晶化温度112.8°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；J104W）にポリブテン1（三井化学株式会社製；P2000）を重量分率で5%配合した組成物について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

数平均分子量83000、ペンタッド分率96.6%、結晶化温度112.8°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；J104W）にポリブテン1（三井化学株式会社製；P2000）を重量分率で5%配合した組成物について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

【0032】実施例3

数平均分子量108000、ペンタッド分率96.0%、結晶化温度111°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；E103）にプロビレンとブテン1の共重合組成比がブテン1の重量分率で30%であるポリ（プロビレン-ブテン1）共重合体（三井化学株式会社製；XL107L）を重量分率で5%配合した組成物を吐出幅400mm、吐出リップ開度2mmのTダイを使用して溶融押出しした。吐出フィルムは、80°Cの冷却ロールに導かれ、25°Cの冷風が吹き付けられて冷却された後、50m/minで引き取られた。得られたポリプロピレン組成物フィルムの膜厚は12μmであった。この未延伸ポリプロピレン組成物フィルムは、引取り方向を固定された状態で、150°Cに30分間熱処理した後、室温まで冷却した。熱処理された未延伸ポリプロピレン組成物フィルムの複屈折は、21.9×10⁻³、100%延伸時の弾性回復率は86%であった。

【0029】熱処理された未延伸ポリプロピレン組成物

フィルムは、恒温槽を装着したテンシロン万能試験機（オリエンテック株式会社製；RTA-500）を用いて、25°Cで25%低温延伸された後、120°Cで総延伸量180%になるまで高温延伸し、次いで30%緩和させ、1分間熱固定して多孔質フィルムを得た。

【0030】得られた多孔質フィルムのガーレー値、ニードル貫通力及び引張り強度の測定結果を表1に示す。上記評価の方法は以下に従って行った。

① ガーレー値

JIS P8117に準じて測定した。測定装置としてB型ガーレーデンソーメーター（東洋精機社製）を使用した。試料片を直径28.6mm、面積645mm²の円孔に締め付ける。内筒重量567gにより、筒内の空気を試験円孔部から筒外へ通過させる。空気100ccが通過する時間を測定し透気度（ガーレー値）とした。

② ニードル貫通力

試料を直径11.28mm、面積1cm²の円孔ホルダーに固定し、先端形状が0.5R、直径1mmのニードルを2mm/secの速度で下降させ突き刺し、貫通荷重を測定した。

③ 引張り強度

ASTM D-822に準じて、延伸方向の破断点強度を測定した。

【0031】実施例2

数平均分子量108000、ペンタッド分率96.0%、結晶化温度111°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；E103）にプロビレンとブテン1の共重合組成比がブテン1の重量分率で30%であるポリ（プロビレン-ブテン1）共重合体（三井化学株式会社製；XL107L）を重量分率で5%配合した組成物について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

【0033】実施例4

数平均分子量108000、ペンタッド分率96.0%、結晶化温度111°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；E103）に密度0.964、融点132°Cの高密度ポリエチレン（三井化学株式会社製；ハイゼックス5202B）を重量分率で3%配合した組成物について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

【0034】比較例1

数平均分子量70000、ペンタッド分率94.3%、結晶化温度112°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；F104）について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

【0035】比較例2

数平均分子量70000、ペンタッド分率94.3%、結晶化温度112°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；F104）にポリブテン1（三井化学株式会社製；P2000）を重量分率で5%配合した組成物について、実施例1と同様にして多孔質フィルムを得た。この多孔質フィルムの測定結果を表1に示す。

【0036】比較例3

数平均分子量83000、ペンタッド分率96.6%、結晶化温度112.8°Cのポリプロピレン（グランドポリマー株式会社製；J104W）について、実施例1と同様の延伸多孔化処理を行ったところ、延伸中にネッキングが生じて多孔化することができなかった。

【0037】

【表1】

	ガーレー値 sec/100cc	ニードル貫通力 g	破断点強度 kgf/mm ²
実施例1	153	210	13.1
実施例2	134	198	12.8
実施例3	154	221	13.9
実施例4	143	195	13.3
比較例1	110	171	10.2
比較例2	105	180	11.3
比較例3	∞	—	—

【0038】

【発明の効果】本発明の電池用セバレーターは、ポリエチレン、ポリ(エチレン-プロピレン)共重合体、ポリブテン1、ポリ(プロピレン-ブテン1)共重合体等のポリオレフィンを適切に配合することで、(乾式)延伸

法では従来困難であったベンタッド分率が高くしかも高分子量のポリプロピレンの多孔化が可能となった。このポリプロピレン組成物を使用することにより、突刺し強度の改良された電池用セバレーターを提供することができる。

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT OR DRAWING
- BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- GRAY SCALE DOCUMENTS
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.
As rescanning documents *will not* correct images problems checked, please do not report the problems to the IFW Image Problem Mailbox